

Fe-Mg-O系グラニューラ薄膜の高電気抵抗軟磁性に関する研究

著者	李 希宰
号	2344
発行年	1998
URL	http://hdl.handle.net/10097/7617

	イ	ヒ	ザ	イ
氏 名	李	希	宰	
授 与 学 位	博	士	(工	学)
学位授与年月日	平	成	11	年3月25日
学位授与の根拠法規	学	位	規	則第4条第1項
研究科、専攻の名称	東	北	大	学大学院工学研究科(博士課程)材料物性学専攻
学 位 論 文 題 目	Fe-Mg-O	系	グラ	ニュラー薄膜の高電気抵抗軟磁性に関する研究
指 導 教 官	東	北	大	学教授 藤森 啓安
論 文 審 査 委 員	主	査	東	北
	大	学	教	授 藤森 啓安 東北大学教授 本間 基文
			東	北
	大	学	教	授 井上 明久

論文内容要旨

第1章 序 論

薄膜磁気デバイスや高密度磁気記録用書込ヘッド等の高性能化のために、100 MHz 前後の周波数帯域で高透磁率、低損失を有する軟磁性薄膜の開発が要求されている。そのような軟磁性薄膜では、高飽和磁化、高電気抵抗と適当な大きさの異方性磁界が必要であり、近年、グラニュラー構造軟磁性薄膜が盛んに研究されている。しかし、これまでに研究されたグラニュラー構造薄膜では、軟磁気特性は限られた組成領域でしか得られず、高透磁率と低損失を同時に得ることは困難であった。また、Fe 系グラニュラー構造軟磁性薄膜では、 α -Fe が本来有している高飽和磁化という特徴が活かされておらず、Co 系グラニュラー構造軟磁性薄膜と同程度の大きさの飽和磁化しか得られていない。

本研究では、Mg が酸化に関して高い生成熱を有し、Fe と固溶しないことに着目し、Fe-Mg-O 系薄膜において高飽和磁化、高透磁率および低損失を同時に満たす軟磁性薄膜を開発することを目的とし、以下の研究を行った。

- 1) 組成およびスパッタガス圧を変化させて Fe-Mg-O 薄膜の成膜を行い、磁気特性、電気抵抗および構造を調べる。また、これらの結果をこれまでに報告されているグラニュラー構造磁性薄膜と比較する。
- 2) 磁界中熱処理による一軸異方性磁界の付与および制御を行い、異方性磁界と透磁率の周波数依存性を調べる。
- 3) 異方性磁界の制御のために、Fe-Mg-O 薄膜に Co、Ni、Ag を添加し、磁気特性、電気抵抗および透磁率の周波数依存性を調べる。
- 4) 高電気抵抗化のために、液体窒素冷却基板上に成膜を行い、磁気特性、電気抵抗および透磁率の周波数依存性を調べ、無冷却の場合と比較を行う。

第2章 実験方法

Fe-Mg-O 薄膜は複合ターゲットを用いて高周波スパッタ法で作製した。組成分析にはラザフォード後方散乱を、構造評価には X 線回折および透過電子顕微鏡を用いた。磁気特性の評価には、試料振動型磁束計及

びパラレルライン高周波透磁率測定装置を用いた。電気抵抗は直流四端子法にて測定した。

第 3 章 Fe-Mg-O 薄膜の磁気特性および電気抵抗

組成およびスパッタガス圧を変化させて Fe-Mg-O 薄膜の成膜を行い、磁気特性、電気抵抗および構造を調べ、既存のグラニューラー構造薄膜と比較を行った。

高飽和磁化と低保磁力を示す組成領域は Fe-Mg-O 三元図上でほぼ同じであり、Mg と O の組成比が 1:1 となる線上から O 濃度が少し過剰な組成領域にあることが分かった。高飽和磁化と低保磁力を示す組成領域での Fe-Mg-O 薄膜は 100 Å 前後の微細な α -Fe の磁性相と酸化物アモルファス相からなるグラニューラー構造を有することが分かった。さらに、Fe-Mg-O 薄膜は Fe-Zr-O 系や Co-Al-O 系と比較して広い組成領域 (50 - 80 at.% Fe) で 5 Oe 以下の低保磁力、10 - 16 kG の高い飽和磁化および 100 - 1000 $\mu\Omega\text{cm}$ の高い電気抵抗率を有することも分かった。特に、Fe 濃度が 60 - 75 at.% においては、熱処理前でも 1 Oe 以下の低保磁力を示した。また、Fe-Mg-O 薄膜は熱処理前では 300 MHz までの周波数領域において 300 - 400 の透磁率を示した。この値は、試料が有する飽和磁化と異方性磁界から計算される値より小さく、その原因は異方性に分散が生じているためであると考えられる。

第 4 章 Fe-Mg-O 薄膜の磁界中熱処理効果と高周波軟磁気特性

低保磁力を示した Fe-Mg-O グラニューラー構造薄膜を磁界中で熱処理することにより一軸異方性磁界の付与および制御を行い、異方性磁界と透磁率の周波数依存性を調べた。

磁界中熱処理により、1 Oe 以下の低保磁力を示した組成領域の薄膜では 6 - 7 Oe 程度の一軸異方性磁界が付与された。Fe₆₇Mg₁₃O₂₀ および Fe₇₀Mg₁₀O₂₀ 薄膜では 14.6 kG という高い飽和磁化を示し、図 1 に示すように 200 MHz までの周波数帯域において透磁率 2000 以上の高透磁率を示した。また、Fe₇₀Mg₁₀O₂₀ 薄膜では 100 MHz における Q 値 (透磁率の実部 / 透磁率の虚部) が約 10 を示し、高飽和磁化、高透磁率と低損失の優れた特性が得られた。さらに、Landau-Lifshitz の運動方程式に基づいて透磁率の計算を行った結

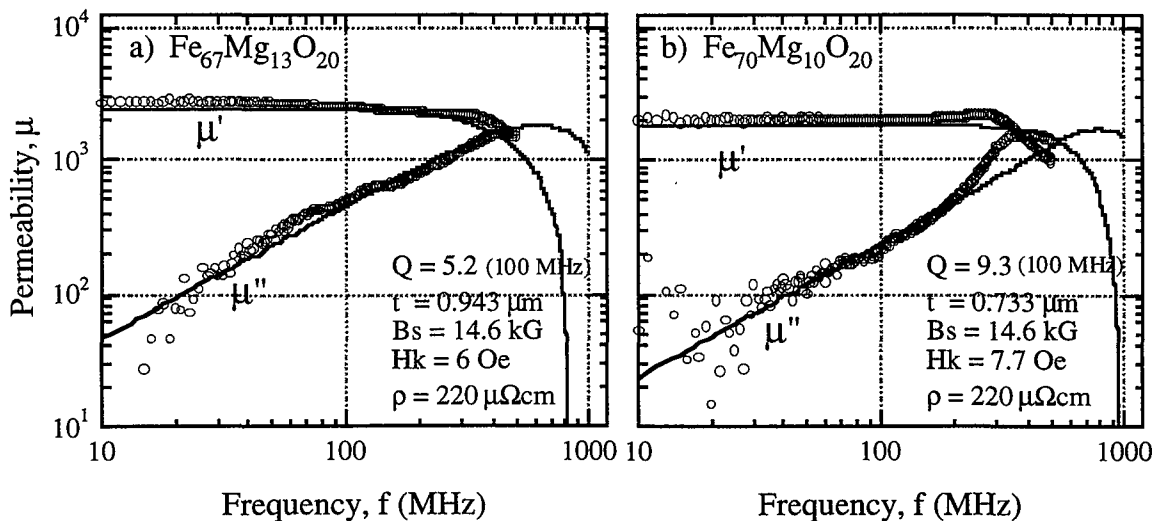


図 1 a) Fe₆₇Mg₁₃O₂₀ と b) Fe₇₀Mg₁₀O₂₀ 薄膜の磁界中熱処理後における透磁率の周波数依存性 (白丸)。μ' 及び μ'' はそれぞれ透磁率の実部と虚部を表す。図中の実線は Landau-Lifshitz の運動方程式に基づいて計算した透磁率である。

果、計算結果と実験結果が良く一致し、角度分散のほとんどない磁化回転が実現していることが示唆される。このことから、Fe-Mg-O グラニューラー構造薄膜は、磁界中熱処理により分散が少ない一軸異方性磁界が得られる系であることが分かった。

第 5 章 Fe-Mg-O グラニューラー構造軟磁性薄膜の添加元素効果および基板冷却効果

まず、Co、Ni、Ag を添加した Fe-Mg-O グラニューラー薄膜の磁気特性、電気抵抗および透磁率の周波数依存性について述べる。

Ni 添加の場合には、構造、磁気特性および電気抵抗率の大きな変化が見られなかった。Ag 添加の場合には、Ag もしくは Ag 化合物の生成を示唆する構造の変化が見られ、それに伴い飽和磁化と電気抵抗率の減少が生じた。Co 添加の場合には、添加による構造および電気抵抗率の大きな変化は見られなかったが、飽和磁化の増加が生じ、酸化物を絶縁相とするグラニューラー構造軟磁性薄膜で最も高い 15.8 kG という高飽和磁化を得られた。さらに磁界中熱処理を行った結果、Co および Ni 添加の場合には異方性磁界は増加し、一方、Ag 添加の場合には異方性磁界は減少し、数 Oe から十数 Oe の範囲で異方性磁界の大きさを制御することができた。これに伴い、図 2 a) に示すように $(\text{Fe}_{0.97}\text{Co}_{0.03})_{67}\text{Mg}_{13}\text{O}_{20}$ 薄膜では 100 MHz で 2800 の高透磁率を実現できた。また、図 2 b) に示すように $(\text{Fe}_{0.83}\text{Co}_{0.17})_{64}\text{Mg}_{13}\text{O}_{23}$ 薄膜では飽和磁化は 15.2 kG、100 MHz における透磁率は 1000 で、さらに 21 という高い Q 値が得られた。これは、高飽和磁化を持ちながら高透磁率と低損失を同時に実現したものであり、これまでにない優れた高周波軟磁気特性である。

次に、液体窒素による基板冷却を行った場合の磁気特性、電気抵抗および透磁率の周波数依存性について述べる。基板冷却を行っても、組成はほとんど変化しないにも関わらず、飽和磁化と電気抵抗率の両方の増加が見られた。 $\text{Fe}_{71}\text{Mg}_{11}\text{O}_{18}$ 薄膜では、飽和磁化 16.4 kG、電気抵抗率約 200 $\mu\Omega\text{cm}$ が得られ、高飽和磁化と高電気抵抗という点に関しては最高の特性を示す Fe-Co-B-F グラニューラー構造軟磁性薄膜とほぼ同程度の結果が得られた。基板冷却による成膜方法はグラニューラー構造磁性薄膜において高飽和磁化、高電気抵抗率のために有効であることが分かった。さらに磁界中熱処理を行った結果では、2200 の高透磁率が得られたが、100 MHz 以上の周波数帯域では透磁率が急激に低下した。

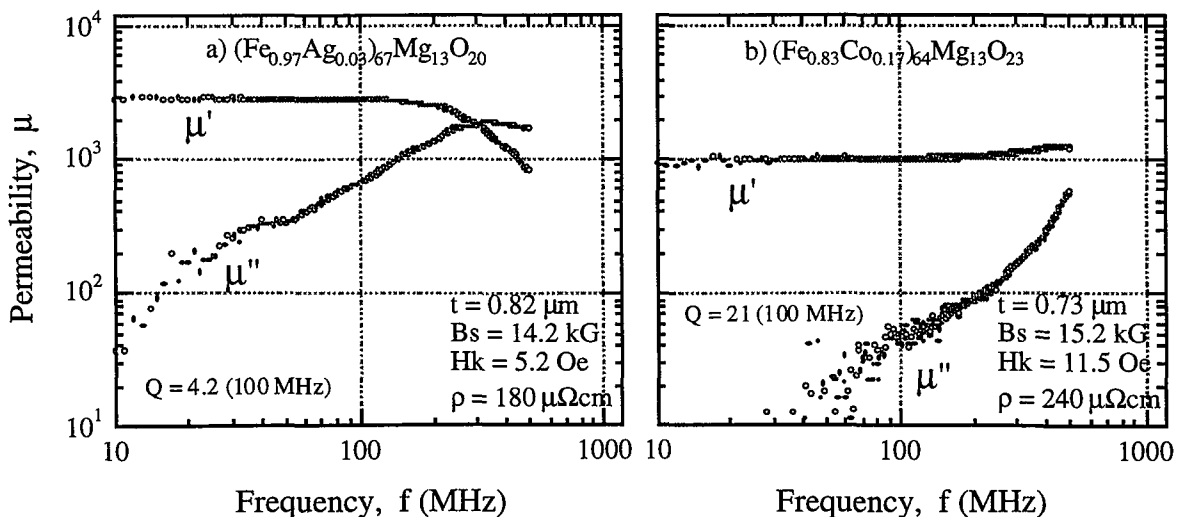


図 2 a) $(\text{Fe}_{0.97}\text{Ag}_{0.03})_{67}\text{Mg}_{13}\text{O}_{20}$ と b) $(\text{Fe}_{0.83}\text{Co}_{0.17})_{64}\text{Mg}_{13}\text{O}_{23}$ 薄膜の磁界中熱処理後における透磁率の周波数依存性

第 6 章 総 括

Fe-Mg-O 薄膜を種々の条件で作製し、高飽和磁化、高電気抵抗率および低保磁力を示す組成領域を探索した。続いて、磁界中熱処理により得られた薄膜に適当な一軸異方性磁界を付与して、優れた高周波高透磁率特性を有するグラニューラー構造軟磁性薄膜を得ることができた。さらに、Co、Ni、Ag 添加により、異方性磁界の大きさを数 Oe から十数 Oe まで制御し、100 MHz において 2800 の高透磁率を示す薄膜と、飽和磁化 15.2 kG、透磁率 1000 及び $Q = 21$ を示す高透磁率低損失薄膜を実現することができた。これらは 100 MHz 前後の周波数帯域で用いる薄膜インダクタのコアや高密度磁気記録ヘッドとして有望な特性を有する材料である。さらに、液体窒素冷却基板上に成膜することにより、飽和磁化と電気抵抗率が同時に増加することを見出し、酸化物系グラニューラー構造軟磁性薄膜でもフッ化物系と同程度の高飽和磁化と高電気抵抗率を有する特性が得られた。

審査の結果の要旨

薄膜インダクターや高密度磁気記録用書込ヘッド等の高性能化のために、100 MHz を越える高周波領域において高透磁率、低損失を示す軟磁性薄膜の開発が要求されている。そのような軟磁性薄膜には、高飽和磁化、高電気抵抗、適切な大きさの異方性磁界を持つことが必要であり、磁性金属と絶縁体からなるグラニューラー構造薄膜が有望視されている。本論文では Fe が高飽和磁化を有すること、Mg が Fe に固溶しないことに着目し、Fe-Mg-O 系グラニューラー構造薄膜を作製してその軟磁気特性を系統的に研究した。その結果、基板冷却スパッタおよび添加元素などにより、優れた高周波高透磁率を得ることに成功した。本論文は、この研究成果についてまとめたものであり、全文 6 章よりなる。

第 1 章は序論であり、本研究の背景及び目的を述べている。

第 2 章では、本研究で用いたグラニューラー構造薄膜の成膜方法、構造解析、磁気測定法を述べている。

第 3 章では、Fe-Mg-O グラニューラー構造薄膜の構造、磁気特性、電気抵抗に及ぼす組成と成膜条件の効果を調べ、広い組成範囲で低保磁力が得られることを見出している。

第 4 章では、磁界中熱処理により一軸異方性磁界の大きさおよび異方性分散を制御することにより、100 MHz において、透磁率 2000 以上、性能指数約 10 を示すことを見出している。

第 5 章では、Fe-Mg-O 薄膜の磁気特性に及ぼす添加元素および基板冷却の影響を系統的に調べている。その結果、添加元素により一軸異方性磁界の大きさを制御でき、高周波透磁率が改善されることを明らかにしている。特に、Ag を添加した場合には、100 MHz で 2800 という高透磁率を実現している。また、Co を添加した場合には、100 MHz で透磁率 1000、性能指数 21 を実現している。これらはこれまでに報告されているグラニューラー構造薄膜の特性を上回る高透磁率・低損失特性であり、重要な成果である。また、基板冷却で大きな飽和磁化および高い電気抵抗の特性を得ている。

第 6 章は結論である。

以上要するに本論文は、Fe-Mg-O グラニューラー構造薄膜の高周波軟磁気特性を系統的に研究し、添加元素や基板冷却が及ぼす影響を明らかにするとともに、優れた高周波高透磁率・低損失の軟磁気特性の実現に成功しており、材料物性学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。